

⑯ BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑯ Offenlegungsschrift
⑯ DE 101 08 156 A 1

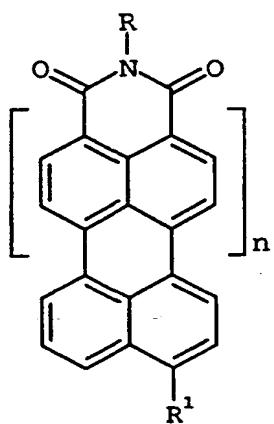
⑯ Int. Cl.⁷:
C 07 D 221/14
C 07 D 491/06
C 09 B 3/18

⑯ Anmelder:
BASF AG, 67063 Ludwigshafen, DE

⑯ Erfinder:
Krieger, Matthias, Dr., 68167 Mannheim, DE; Böhm,
Arno, Dr., 68305 Mannheim, DE; Reuther, Erik,
55122 Mainz, DE; Müllen, Klaus, Prof. Dr., 50939
Köln, DE

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

⑯ Rylenderivate
⑯ Rylenderivate der allgemeinen Formel I

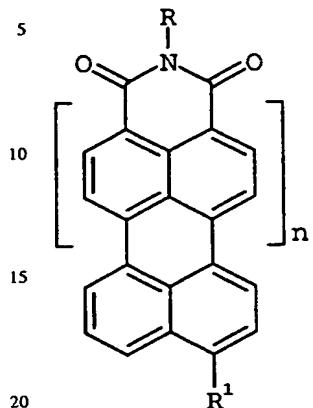


mit folgender Bedeutung der Variablen:
R Wasserstoff oder gegebenenfalls substituiertes
C₁-C₃₀-Alkyl, Aryl oder Hetaryl;
R¹ Wasserstoff oder Brom;
R² Wasserstoff oder C₁-C₆-Alkyl;
R³ Wasserstoff, C₁-C₁₈-Alkyl oder gegebenenfalls substi-
tuuiertes Aryl oder Hetaryl;
n 2 oder 3.

DE 101 08 156 A 1

Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft neue Rylenderivate der allgemeinen Formel I



in der die Variablen folgende Bedeutung haben:

R Wasserstoff;

C₁-C₃₀-Alkyl, dessen Kohlenstoffkette durch eine oder mehrere Gruppierungen -O-, -S-, -NR²-, -CO- und/oder -SO₂- unterbrochen sein kann und das durch Carboxy, Sulfo, Hydroxy, Cyano, C₁-C₆-Alkoxy und/oder einen über ein Stickstoffatom gebundenen, 5- bis 7-gliedrigen heterocyclischen Rest, der weitere Heteroatome enthalten und aromatisch sein kann, ein- oder mehrfach substituiert sein kann;

Aryl oder Hetaryl, das durch C₁-C₁₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, Halogen, Hydroxy, Cyano, Carboxy, -CONHR³, -NHCOR³ und/oder Aryl- oder Hetarylazo, das jeweils durch C₁-C₁₀-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, Halogen, Hydroxy, Cyano oder Carboxy substituiert sein kann, ein- oder mehrfach substituiert sein kann;

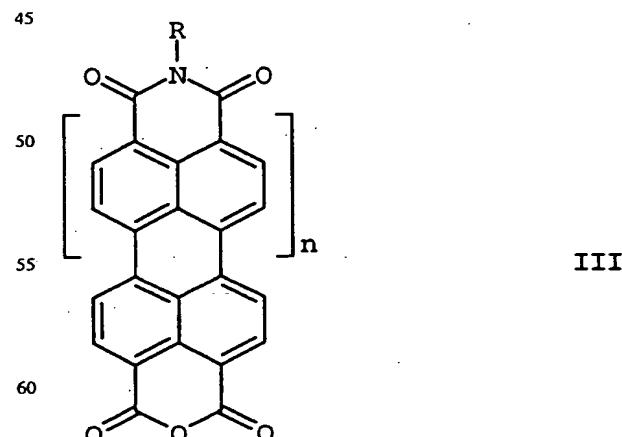
R¹ Wasserstoff oder Brom;

R² Wasserstoff oder C₁-C₆-Alkyl;

R³ Wasserstoff; C₁-C₁₈-Alkyl; Aryl oder Hetaryl, das jeweils durch C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, Halogen, Hydroxy oder Cyano substituiert sein kann;

n 2 oder 3,
sowie die Herstellung der Rylenderivate I und ihre Verwendung zur Einfärbung von hochmolekularen organischen und anorganischen Materialien, insbesondere von Kunststoffen, Lacken und Druckfarben, als Dispergierhilfsmittel, Pigmentadditive für organische Pigmente und Zwischenprodukte für die Herstellung von Fluoreszenzfarbmitteln und Pigmentadditiven, als fargebende Komponente in der dekorativen Kosmetik, zur Herstellung farbiger oder im nahinfraroten Bereich des elektromagnetischen Spektrums absorbierender und/oder emittierender wässriger Polymerdispersionen, als Photoleiter in der Elektrophotographie, als Emitter in Elektro- und Chemilumineszenzanwendungen, als Aktivkomponenten in der Fluoreszenzkonversion und als Laserfarbstoffe.

[0002] Außerdem betrifft die Erfindung neue Rylentetracarbonsäuremonoimidmonoanhydride der allgemeinen Formel III



in der die Variablen die oben angegebene Bedeutung haben, als Zwischenprodukte für die Darstellung der Rylenderivate I sowie ihre Herstellung und Verwendung zur Einfärbung von hochmolekularen organischen und anorganischen Materialien, als Dispergierhilfsmittel, Pigmentadditive für organische Pigmente und Zwischenprodukte für die Herstellung polymerisierbarer Farbmittel und Pigmentadditive, als fargebende Komponente in der dekorativen Kosmetik, zur Herstellung farbiger oder im nahinfraroten Bereich des elektromagnetischen Spektrums absorbierender und/oder emittierender

DE 101 08 156 A 1

der wäßriger Polymerisatdispersionen, als Photoleiter in der Elektrophotographie, als Emitter in Elektro- und Chemilumineszenzanwendungen, als Aktivkomponenten in der Fluoreszenzkonversion und als Laserfarbstoffe.

[0003] Kürzere Rylen-3,4-dicarbonsäureimide (mit n = 0 oder 1 in Formel I, d. h. entsprechende Naphthalin-und Perylenderivate) sind bekannt. Unsubstituierte bzw. in der peri-Position (9-Position des Perylengerüsts) durch Halogen substituierte Perylen-3,4-dicarbonsäureimide werden beispielsweise in der EP-A-636 666, in Chimia 48, S. 503-505 (1994) sowie in der EP-A-592 292 und in Dyes and Pigments 16, S. 19-25 (1991) beschrieben. Weitere zusätzlich im Perylengerüst substituierte 9-Halogenperylen-3,4-dicarbonsäureimide sind in der WO-A-96/22332 offenbart. Den bekannten Verbindungen ist gemeinsam, daß sie im nahen UV oder dem kurzweligen Bereich des sichtbaren Spektrums, d. h. im wesentlichen im Bereich von 340 bis 540 nm, absorbieren.

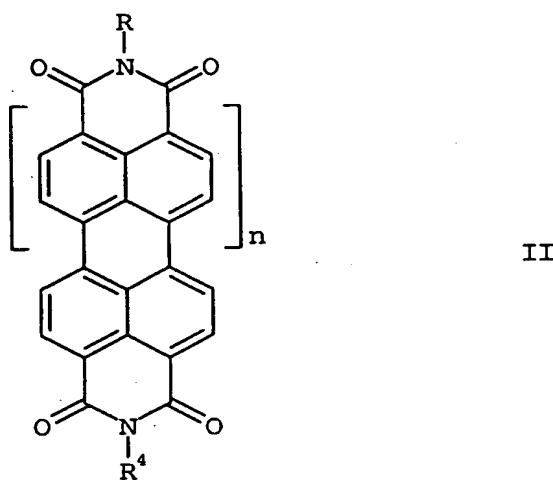
[0004] Der Erfindung lag die Aufgabe zugrunde, Rylenderivate bereitzustellen, die im langwelligen, d. h. im roten und infraroten, Bereich des elektromagnetischen Spektrums absorbieren und emittieren und in der peri-Position gezielt derivatisierbar sind.

[0005] Demgemäß wurden die Terrylen- und Quaterrylenlderivate der eingangs definierten Formel I gefunden.

[0006] Bevorzugte Rylenderivate sind dem Unteranspruch zu entnehmen.

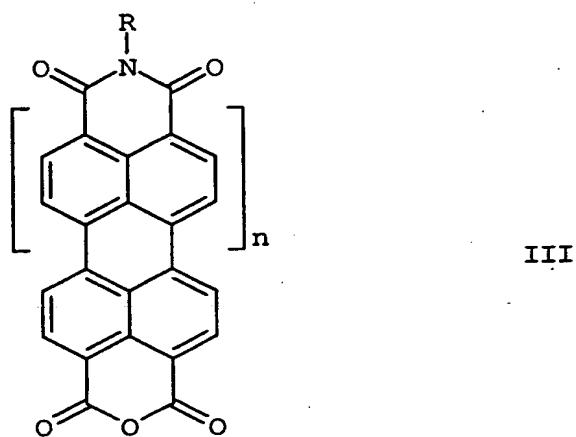
[0007] Weiterhin wurde ein Verfahren zur Herstellung der Rylenderivate I gefunden, welches dadurch gekennzeichnet ist, daß man

a) ein asymmetrisches Rylentetracarbonsäurediimid der allgemeinen Formel II



in der R⁴ C₅-C₈-Cycloalkyl, dessen Kohlenstoffgerüst durch eine oder mehrere Gruppierungen -O-, -S- und/oder -NR₂- unterbrochen sein kann und das durch C₁-C₆-Alkyl ein- oder mehrfach substituiert sein kann, bedeutet, unter alkalischen Bedingungen in Gegenwart eines polaren organischen Lösungsmittels einseitig verseift,

b) das in Schritt a) gebildete Rylentetracarbonsäuremonoimidmonoanhydrid der allgemeinen Formel III



in Gegenwart einer tertiären stickstoffbasischen Verbindung und eines Übergangsmetallkatalysators einseitig decarboxyliert und

c) das Reaktionsprodukt gewünschtenfalls abschließend mit elementarem Brom umsetzt.

[0008] Außerdem wurde ein Verfahren zur Herstellung der Rylentetracarbonsäuremonoimidmonoanhydride III gefunden, welches dadurch gekennzeichnet ist, daß man ein asymmetrisches Rylentetracarbonsäurediimid II unter alkalischen

DE 101 08 156 A 1

Bedingungen in Gegenwart eines polaren organischen Lösungsmittels einseitig verseift.

- [0009] Zudem wurden die Rylentetracarbonsäuremonoimidmonoanhydride der eingangs definierten Formel III als Zwischenprodukte für die Rylen-3,4-dicarbonsäureimide I gefunden.
- [0010] Nicht zuletzt wurden die ebenfalls eingangs genannten Anwendungszwecke für die Rylenderivate I und die Rylentetracarbonsäuremonoimidmonoanhydride gefunden.
- [0011] Alle in den Formeln I bis III auftretenden Alkylgruppen können geradketig oder verzweigt sein. Wenn die Alkylgruppen substituiert sind, tragen sie in der Regel 1 oder 2 Substituenten.
- [0012] Als Beispiele für geeignete Reste R, R¹, R², R³ und R⁴ (bzw. für deren Substituenten) seien im einzelnen genannt:
- 10 Methyl, Ethyl, Propyl, Isopropyl, Butyl, Isobutyl, tert.-Butyl, Pentyl, Isopentyl, Neopentyl, tert.-Pentyl, Hexyl, 2-Methylpentyl, Heptyl, 1-Ethylpentyl, Octyl, 2-Ethylhexyl, Isooctyl, Nonyl, Isononyl, Decyl, Isodecyl, Undecyl, Dodecyl, Tridecyl, Isotridecyl, Tetradecyl, Pentadecyl, Hexadecyl, Heptadecyl, Octadecyl, Nonadecyl und Eicosyl (die obigen Bezeichnungen Isooctyl, Isononyl, Isodecyl und Isotridecyl sind Trivialbezeichnungen und stammen von den nach der Oxosynthese erhaltenen Alkoholen);
- 15 2-Methoxyethyl, 2-Ethoxyethyl, 2-Propoxyethyl, 2-Isopropoxyethyl, 2-Butoxyethyl, 2- und 3-Methoxypropyl, 2- und 3-Ethoxypropyl, 2- und 3-Propoxypropyl, 2- und 3-Butoxypropyl, 2- und 4-Methoxybutyl, 2- und 4-Ethoxybutyl, 2- und 4-Propoxybutyl, 3,6-Dioxaheptyl, 3,6-Dioxaoctyl, 3,7-Dioxaoctyl, 3,7-Dioxaundecyl, 4,7-Dioxaundecyl, 2- und 4-Butoxybutyl, 4,8-Dioxadecyl, 3,6,9-Trioxadecyl, 3,6,9-Trioxaundecyl, 3,6,9-Trioxadodecyl, 3,6,9,12-Tetraoxatradeccyl und 3,6,9,12-Tetraoxatetradeccyl;
- 20 2-Methylthioethyl, 2-Ethylthioethyl, 2-Propylthioethyl, 2-Isopropylthioethyl, 2-Butylthioethyl, 2- und 3-Methylthiopropyl, 2- und 3-Ethylthiopropyl, 2- und 3-Propylthiopropyl, 2- und 3-Butylthiopropyl, 2- und 4-Methylthiobutyl, 2- und 4-Ethylthiobutyl, 2- und 4-Propylthiobutyl, 3,6-Dithiaheptyl, 3,6-Dithiaoctyl, 4,8-Dithianonyl, 3,7-Dithiaocetyl, 3,7-Dithianonyl, 2- und 4-Butylthiobutyl, 4,8-Dithiadecyl, 3,6,9-Trithiaundecyl, 3,6,9-Trithiadodecyl, 3,6,9,12-Tetrathiatradeccyl und 3,6,9,12-Tetrathiatetradeccyl;
- 25 2-Monomethyl- und 2-Monoethylaminoethyl, 2-Dimethylaminoethyl, 2- und 3-Dimethylaminopropyl, 3-Monoisopropylaminopropyl, 2- und 4-Monopropylaminobutyl, 2- und 4-Dimethylaminobutyl, 6-Methyl-3,6-diazahexyl, 3,6-Dimethyl-3,6-diazahexyl, 3,6-Diazaoctyl, 3,6-Dimethyl-3,6-diazaoctyl, 9-Methyl-3,6,9-triazadecyl, 3,6,9-Trimethyl-3,6,9-triazadecyl, 3,6,9-Triazaundecyl, 3,6,9-Trimethyl-3,6,9-triazaundecyl, 12-Methyl-3,6,9,12-tetraazatradeccyl und 3,6,9,12-Tetramethyl-3,6,9,12-tetraazatradeccyl; Propan-2-on-1-yl, Butan-3-on-1-yl, Butan-3-on-2-yl und 2-Ethylpentan-3-on-1-yl;
- 30 2-Methylsulfonyleethyl, 2-Ethylsulfonyleethyl, 2-Propylsulfonyleethyl, 2-Isopropylsulfonyleethyl, 2-Butylsulfonyleethyl, 2- und 3-Methylsulfonylpropyl, 2- und 3-Ethylsulfonylpropyl, 2- und 3-Propylsulfonylpropyl, 2- und 3-Butylsulfonylpropyl, 2- und 4-Methylsulfonylbutyl, 2- und 4-Ethylsulfonylbutyl, 2- und 4-Propylsulfonylbutyl und 4-Butylsulfonylbutyl; Carboxymethyl, 2-Carboxyethyl, 3-Carboxypropyl, 4-Carboxybutyl, 5-Carboxypentyl, 6-Carboxyhexyl, 8-Carboxyoctyl, 10-Carboxydecyl, 12-Carboxydodecyl und 14-Carboxytetradeccyl;
- 35 Sulfomethyl, 2-Sulfoethyl, 3-Sulfopropyl, 4-Sulfobutyl, 5-Sulfopentyl, 6-Sulfohexyl, 8-Sulfooctyl, 10-Sulfodecyl, 12-Sulfododecyl und 14-Sulfotetradeccyl; 2-Hydroxethyl, 3-Hydroxypropyl, 1-Hydroxyprop-2-yl, 2- und 4-Hydroxybutyl, 1-Hydroxybut-2-yl und 8-Hydroxy-4-oxaoctyl;
- 40 Cyanomethyl, 2-Cyanoethyl, 3-Cyanopropyl, 2-Methyl-3-ethyl-3-cyanopropyl, 7-Cyano-7-ethylheptyl und 4,7-Dimethyl-7-cyanoheptyl; Methoxy, Ethoxy, Propoxy, Isopropoxy, Butoxy, Isobutoxy, sec.-Butoxy, tert.-Butoxy, Pentoxy, Isopentoxy, Neopentoxy, tert.-Pentoxy und Hexoxy;
- 45 Carbamoyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, Propylaminocarbonyl, Butylaminocarbonyl, Pentylaminocarbonyl, Hexylaminocarbonyl, Heptylaminocarbonyl, Octylaminocarbonyl, Nonylaminocarbonyl, Decylaminocarbonyl und Phenylaminocarbonyl; Formylamino, Acetylamino, Propionylamino und Benzoylamino; Chlor, Brom und Iod; Phenylazo, 2-Naphthylazo, 2-Pyridylazo und 2-Pyrimidylazo;
- 50 Phenyl, 2-Naphthyl, 2- und 3-Pyrrol, 2-, 3- und 4-Pyridyl, 2-, 4- und 5-Pyrimidyl, 3-, 4- und 5-Pyrazolyl, 2-, 4- und 5-Imidazolyl, 2-, 4- und 5-Thiazolyl, 3-(1,2,4-Triazyl), 2-(1,3,5-Triazyl), 6-Chinaldyl, 3-, 5-, 6- und 8-Chinolinyl, 2-Benzoxazolyl, 2-Benzothiazolyl, 5-Benzothiadiazolyl, 2- und 5-Benzimidazolyl und 1- und 5-Isochinolyl; 2-, 3- und 4-Methylphenyl, 2,4-, 2,5-, 3,5- und 2,6-Dimethylphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, 2-, 3- und 4-Ethylphenyl, 2,4-, 2,5-, 3,5- und 2,6-Diethylphenyl, 2,4,6-Triethylphenyl, 2-, 3- und 4-Propylphenyl, 2,4-, 2,5-, 3,5- und 2,6-Dipropylphenyl, 2,4,6-Tripropylphenyl, 2-, 3- und 4-Isopropylphenyl, 2,4-, 2,5-, 3,5- und 2,6-Diisopropylphenyl, 2,4,6-Triisopropylphenyl, 2-, 3- und 4-Butylphenyl, 2,4-, 2,5-, 3,5- und 2,6-Dibutylphenyl, 2,4,6-Tributylphenyl, 2-, 3- und 4-Isobutylphenyl, 2,4-, 2,5-, 3,5- und 2,6-Diisobutylphenyl, 2,4,6-Triisobutylphenyl, 2-, 3- und 4-sec.-Butylphenyl, 2,4-, 2,5-, 3,5- und 2,6-Di-sec.-butylphenyl und 2,4,6-Tri-sec.-butylphenyl, 2-, 3- und 4-tert.-Butylphenyl, 2,4-, 2,5-, 3,5- und 2,6-Di-tert.-butylphenyl, 2,4,6-Triter.-butylphenyl; 2-, 3- und 4-Methoxyphenyl, 2,4-, 2,5-, 3,5- und 2,6-Dimethoxyphenyl, 2,4,6-Trimethoxyphenyl, 2-, 3- und 4-Ethoxyphenyl, 2,4-, 2,5-, 3,5- und 2,6-Diethoxyphenyl, 2,4,6-Triethoxyphenyl, 2-, 3- und 4-Propoxyphenyl, 2,4-, 2,5-, 3,5- und 2,6-Dipropoxyphenyl und 2-, 3- und 4-Butoxyphenyl; 2-, 3- und 4-Chlorphenyl, 2,4-, 2,5-, 3,5- und 2,6-Dichlorphenyl; 2-, 3- und 4-Hydroxyphenyl und 2,4-, 2,5-, 3,5- und 2,6-Dihydroxyphenyl; 2-, 3- und 4-Cyanophenyl; 3- und 4-Carboxyphenyl; 3- und 4-Carboxamidophenyl, 3- und 4-N-Methylcarboxamidophenyl und 3- und 4-N-Ethylcarboxamidophenyl; 3- und 4-Acetylaminophenyl, 3- und 4-Propionylaminophenyl und 3- und 4-Butyrylaminophenyl; 3- und 4-N-Phenylaminophenyl, 3- und 4-N-(o-Tolyl)aminophenyl, 3- und 4-N-(m-Tolyl)aminophenyl und 3- und 4-N-(p-Tolyl)aminophenyl; 3- und 4-(2-Pyridyl)aminophenyl, 3- und 4-(3-Pyridyl)aminophenyl, 3- und 4-(4-Pyridyl)aminophenyl, 3- und 4-(2-Pyrimidyl)aminophenyl und 4-(4-Pyrimidyl)aminophenyl;
- 65

DE 101 08 156 A 1

4-Phenylazophenyl, 4-(1-Naphthylazo)phenyl, 4-(2-Naphthylazo)phenyl, 4-(4-Naphthylazo)phenyl, 4-(2-Pyridylazo)phenyl, 4-(3-Pyridylazo)phenyl, 4-(4-Pyridylazo)phenyl, 4-(2-Pyrimidylazo)phenyl, 4-(4-Pyrimidylazo)phenyl und 4-(5-Pyrimidylazo) phenyl;

Cyclopentyl, 2- und 3-Methylcyclopentyl, 2- und 3-Ethylcyclopentyl, Cyclohexyl, 2-, 3- und 4-Methylcyclohexyl, 2-, 3- und 4-Ethylcyclohexyl, 3- und 4-Propylcyclohexyl, 3- und 4-Isopropylcyclohexyl, 3- und 4-Butylcyclohexyl, 3- und 4-sec.-Butylcyclohexyl, 3- und 4-tert.-Butylcyclohexyl, Cycloheptyl, 2-, 3- und 4-Methylcycloheptyl, 2-, 3- und 4-Ethylcycloheptyl, 3- und 4-Propylcycloheptyl, 3- und 4-Isopropylcycloheptyl, 3- und 4-Butylcycloheptyl, 3- und 4-sec.-Butylcycloheptyl, 3- und 4-tert.-Butylcycloheptyl, Cyclooctyl, 2-, 3-, 4- und 5-Methylcyclooctyl, 2-, 3-, 4- und 5-Ethylcyclooctyl, 3-, 4- und 5-Propylcyclooctyl, 2-Dioxanyl, 4-Morpholinyl, 2- und 3-Tetrahydrofuryl, 1-, 2- und 3-Pyrrolidinyl und 1-, 2-, 3- und 4-Piperidyl.

[0013] Die Herstellung der Rylenderivate I kann vorteilhaft nach dem erfindungsgemäßen mehrstufigen Verfahren, bei dem in Schritt a) ein asymmetrisches, an einem Imidstickstoff durch einen Cycloalkylrest substituiertes Rylentetracarbonsäurediimid II einseitig verseift wird und in Schritt b) das gebildete Rylentetracarbonsäuremonoimidoanhydrid III einseitig decarboxyliert wird. Ist ein in peri-Position bromiertes Rylenderivat I ($R^1 = Br$) gewünscht, so wird ein in der peri-Position unsubstituiertes Rylenderivat I ($R^1 = H$) noch in einem weiteren Schritt c) mit elementarem Brom umgesetzt.

[0014] Schritt a) des erfindungsgemäßen Verfahrens, die Verseifung der cycloalkylsubstituierten Imidgruppe der Rylentetracarbonsäurediimide II, wird in Gegenwart eines polaren organischen Lösungsmittels und einer Base vorgenommen.

[0015] Die hierfür als Edukte eingesetzten asymmetrischen Rylentetracarbonsäurediimide II sind bekannt und können wie in der EP-A-592 292 und in Chem. Eur. Journal 3, S. 219-225 (1997) beschrieben hergestellt werden.

[0016] Geeignete Lösungsmittel sind insbesondere verzweigte C₃-C₆-Alkohole, wie Isopropanol, tert.-Butanol und 2-Methyl-2-butanol. Im allgemeinen kommen 40 bis 200 g Lösungsmittel je g II zum Einsatz.

[0017] Als Basen eignen sich anorganische Basen, insbesondere Alkali- und Erdalkalimetallhydroxide, z. B. Natriumhydroxid und Kaliumhydroxid, die vorzugsweise in Form von wässrigen Lösungen bzw. Suspensionen (in der Regel 50 bis 80 gew.-%ig) verwendet werden, und organische Basen, insbesondere Alkali- und Erdalkalimetallalkoxide, wobei Natrium- und Kaliumalkoxide, wie Natriummethylat, Kaliummethylat, Kaliumisopropylat und Kalium-tert.-butylat bevorzugt sind, die üblicherweise in wasserfreier Form eingesetzt werden.

[0018] In der Regel werden 5 bis 50 Äquivalente Base, bezogen auf II, benötigt.

[0019] Die Reaktionstemperatur beträgt im allgemeinen 50 bis 120°C, vorzugsweise 60 bis 100°C.

[0020] Die Verseifung ist üblicherweise in 10 bis 40 h abgeschlossen.

[0021] Verfahrenstechnisch geht man in Schritt a) zweckmäßigerweise wie folgt vor:

Man erhitzt eine Suspension aus Rylentetracarbonsäurediimid II, Base und Lösungsmittel unter starkem Rühren auf die gewünschte Reaktionstemperatur. Nach beendeter Verseifung und Abkühlen auf Raumtemperatur stellt man mit einer Säure, z. B. einer anorganischen Säure, wie Salzsäure, oder einer organischen Säuren, wie Essigsäure, einen pH-Wert von 1 bis 4 ein. Man filtriert das Produkt ab, wäscht mit heißem Wasser und trocknet anschließend im Vakuum bei etwa 100°C.

[0022] In der Regel hat das in Schritt a) erhaltene Rylentetracarbonsäuremonoimidoanhydrid III bereits einen so hohen Wertgehalt (>90%), daß es direkt für die Decarboxylierung in Schritt b) eingesetzt werden kann.

[0023] In Schritt b) des erfindungsgemäßen Verfahrens werden die Rylentetracarbonsäuremonoimidoanhydride III in Gegenwart einer tertiären stickstoffbasischen Verbindung als Lösungsmittel und eines Übergangsmetallkatalysators einseitig decarboxyliert.

[0024] Geeignete Lösungsmittel sind insbesondere hochsiedende Stickstoffbasen, z. B. cyclische Amide, wie N-Methylpyrrolidon, und aromatische Heterocyclen, wie Chinolin, Isochinolin und Chinaldin.

[0025] Übliche Lösungsmittelmengen betragen 20 bis 150 g je g III.

[0026] Als Katalysatoren eignen sich insbesondere die Übergangsmetalle Kupfer und Zink sowie besonders auch deren anorganische und organische Salze, die vorzugsweise in wasserfreier Form eingesetzt werden.

[0027] Beispiele für bevorzugte Salze sind Kupfer(I)oxid, Kupfer(II)oxid, Kupfer(I)chlorid, Kupfer(II)acetat, Zinkacetat und Zinkpropionat, wobei Kupfer(I)oxid und Zinkacetat besonders bevorzugt sind.

[0028] Selbstverständlich kann man auch Mischungen der genannten Katalysatoren verwenden.

[0029] In der Regel kommen 50 bis 90 mol-% Katalysator, bezogen auf III, zum Einsatz.

[0030] Die Reaktionstemperatur liegt im allgemeinen bei 100 bis 250°C, insbesondere 160 bis 200°C. Es empfiehlt sich, unter Verwendung einer Schutzgasatmosphäre (z. B. Stickstoff) zu arbeiten.

[0031] Üblicherweise ist die Decarboxylierung in 3 bis 20 h beendet. Verfahrenstechnisch geht man in Schritt b) zweckmäßigerweise wie folgt vor:

Man erhitzt eine Mischung aus Rylentetracarbonsäuremonoimidoanhydrid III, Lösungsmittel und Katalysator und unter Rühren auf die gewünschte Reaktionstemperatur. Nach beendeter Decarboxylierung und Abkühlen auf Raumtemperatur gießt man das Reaktionsgemisch auf etwa das gleiche Volumen eines niedrig siedenden Alkohols, z. B. Methanol, versetzt unter Rühren mit der gleichen Menge einer verdünnten anorganischen Säure, z. B. einer 5-6 Gew.-%-igen Salzsäure und filtriert das Produkt ab.

[0032] Gewünschtenfalls röhrt man das Rohprodukt in einem geeigneten Lösungsmittel, z. B. einem aromatischen Lösungsmittel wie Xylol, auf, filtriert, wäscht mit einem niedrig siedenden Alkohol und trocknet es im Vakuum bei etwa 75°C.

[0033] Eine weitere Aufreinigung ist durch Umkristallisation aus einem hochsiedenden Lösungsmittel, z. B. N-Methylpyrrolidon, möglich. In der Regel ist dies jedoch nicht erforderlich, da die erhaltenen Rylenderivate I ($R^1 = H$) bereits einen Wertgehalt von > 95% aufweisen.

[0034] Zur Herstellung der in peri-Position bromierten Rylenderivate I ($R^1 = Br$) können die unsubstituierten Rylenderivate I noch dem erfindungsgemäßen Schritt c), der regioselektiven Bromierung, unterzogen werden.

DE 101 08 156 A 1

[0035] Diese Bromierung wird vorzugsweise in einer aliphatischen Monocarbonsäure, insbesondere einer C₁-C₄-Carbonsäure, wie Ameisensäure, Essigsäure, Propionsäure, Buttersäure oder deren Mischungen, oder in einem halogenierten, aliphatischen oder aromatischen Lösungsmittel, wie Methylenchlorid, Chloroform oder Chlorbenzol, durchgeführt.

[0036] Üblicherweise werden 5 bis 30 g, vorzugsweise 15 bis 25 g, Lösungsmittel je g zu bromierendes I eingesetzt.

5 [0037] In der Regel ist die Anwesenheit eines Halogenierungskatalysators nicht erforderlich. Will man jedoch die Bromierungsreaktion beschleunigen (etwa um den Faktor 15 bis 2), so empfiehlt es sich, elementares Iod, bevorzugt in einer Menge von 1 bis 5 mol-%, bezogen auf I, zuzusetzen.

[0038] Im allgemeinen liegt das Molverhältnis von Brom zu I bei etwa 1 : 1 bis 5 : 1, vorzugsweise bei 3 : 1 bis 4 : 1.

[0039] Die Reaktionstemperatur beträgt in der Regel 0 bis 70°C, insbesondere 10 bis 40°C.

10 [0040] In Abhängigkeit von der Reaktivität des Substrats I und der An- oder Abwesenheit von Iod ist die Bromierung üblicherweise in 2 bis 12 h beendet.

[0041] Verfahrenstechnisch geht man in Schritt c) zweckmäßigerweise wie folgt vor:

[0042] Man stellt eine Mischung aus dem zu bromierenden Rylenderivat I und Lösungsmittel unter Rühren in 15 bis 30 min auf die gewünschte Reaktionstemperatur ein, setzt gegebenenfalls Katalysator und anschließend in 5 bis 10 min 15 die gewünschte Brommenge zu und röhrt die Mischung unter Lichtausschluß 2 bis 12 h bei der Reaktionstemperatur. Nach Entfernen von überschüssigem Brom mit einem kräftigen Stickstoffstrom trägt man das Reaktionsgemisch in die etwas gleiche Menge eines aliphatischen Alkohols, z. B. Methanol, ein, röhrt über Nacht, filtriert das ausgefallene Produkt ab, wäscht es vorzugsweise mit dem gleichen Alkohol und trocknet es unter Vakuum bei etwa 120°C.

[0043] In der Regel haben auch die in Schritt c) erhaltenen bromierten Rylenderivate I bereits einen so hohen Wertgehalt (> 95%), daß sie direkt für den gewünschten Anwendungszweck eingesetzt werden können.

[0044] Die erfindungsgemäßen Rylenderivate I eignen sich hervorragend zur homogenen Einfärbung von hochmolekularen organischen und anorganischen Materialien, insbesondere z. B. von Kunststoffen, vor allem von thermoplastischen Kunststoffen, Lacken und Druckfarben sowie oxidischen Schichtsystemen.

[0045] Außerdem eignen sie sich als Dispergierhilfsmittel, Pigmentadditive für organische Pigmente und Zwischenprodukte für die Herstellung von Fluoreszenzfärbmitteln und Pigmentadditiven, als fargebende Komponenten in der dekorativen Kosmetik, zur Herstellung farbiger oder im nahinfraroten Bereich des elektromagnetischen Spektrums absorbierender und/oder emittierender wässriger Polymerisatdispersionen und als Photoleiter in der Elektrophotographie, als Emitter in Elektro- und Chemilumineszenzanwendungen, als Aktivkomponenten in der Fluoreszenzkonversion und als Laserfarbstoffe.

20 [0046] Auch die als Zwischenprodukte für die Rylenderivate I dienenden Rylentetracarbonsäuremonoimidmonoanhydride III können selbst zur Einfärbung der oben genannten hochmolekularen organischen und anorganischen Materialien, als Dispergierhilfsmittel, Pigmentadditive für organische Pigmente und Zwischenprodukte für die Herstellung polymerisierbarer Farbmittel und Pigmentadditive, als fargebende Komponente in der dekorativen Kosmetik, zur Herstellung farbiger oder im nahinfraroten Bereich des elektromagnetischen Spektrums absorbierender und/oder emittierender wässriger Polymerisatdispersionen, als Photoleiter in der Elektrophotographie, als Emitter in Elektro- und Chemilumineszenzanwendungen, als Aktivkomponenten in der Fluoreszenzkonversion und als Laserfarbstoffe eingesetzt werden.

25

30

35

Beispiele

40 A) Herstellung von erfindungsgemäßen Rylentetracarbonsäuremonoimidmonoanhydriden der Formel III

Beispiele 1 bis 6

45 [0047] 10 g (x mmol) Rylentetracarbonsäurediimid II wurden in 500 ml Isopropanol eingetragen und mit einem Gemisch aus 40 g Kaliumhydroxid und 30 ml Wasser versetzt. Die Mischung wurde dann t h unter Rühren zum Rückfluß erhitzt.

[0048] Nach Abkühlen auf Raumtemperatur wurde das Reaktionsgemisch in 300 ml eines Gemisches aus 2 Volumen-50 teilen Wasser und einem Volumenteil konzentrierter Salzsäure gegebenen. Nach 30minütigem Rühren wurde das Produkt abfiltriert, mit Wasser bis zur pH-Neutralität gewaschen und im Vakuum bei 100°C getrocknet.

[0049] Weitere Einzelheiten zu diesen Versuchen sowie deren Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

55

60

65

Tabelle 1

Bsp.	x [mmol]	Rylentetracarbonsäurediimid II	t [h]	Ausbeute [g]/[%]	Aussehen	Smp. [°C]
1	13,2	N-(2,6-Diisopropylphenyl)-N'-cyclohexylterrylen-3,4:11,12-tetracarbonsäurediimid	20	8,9/100	blauviolett, mikrokristallin	>350
2	14,2	N-(p-Methoxyphenyl)-N'-cyclohexylterrylen-3,4:11,12-tetracarbonsäurediimid	28	8,4/ 95	schwarz-blau, amorph	>350
3	13,1	N-Dodecy1-N'-cyclohexylterrylen-3,4:11,12-tetracarbonsäurediimid	18	8,7/ 97	schwarz, amorph	>350
4	11,4	N-(2,6-Diisopropylphenyl)-N'-cyclohexylquatterrylen-3,4:13,14-tetracarbonsäurediimid	15	8,9/ 98	schwarz, mikrokristallin	>350
5	12,1	N-(p-Methoxyphenyl)-N'-cyclohexylquatterrylen-3,4:13,14-tetracarbonsäurediimid	20	8,3/ 92	violet-schwarz, amorph	>350
6	11,3	N-Dodecy1-N'-cyclohexylquatterrylen-3,4:13,14-tetracarbonsäurediimid	28	8,6/ 95	violet-schwarz, amorph	>350

B) Herstellung von erfundungsgemäßen Rylenderivaten I ($R^1 = H$)

Beispiele 7 bis 12

[0050] Eine Mischung aus x g (7 mmol) Rylentetracarbonsäuremonoimmonoanhydrid III und 7 g Kupfer(I)oxid in

5
10
15
20
25
30
35
40
45
50
55
60
65

DE 101 08 156 A 1

400 ml Chinolin wurde unter Rühren auf 220°C erhitzt und 1 h bei dieser Temperatur gehalten. Nach Abkühlen auf Raumtemperatur wurde die Reaktionslösung in 400 ml Methanol eingetragen und mit 400 ml eines Gemisches aus 3 Volumenteilen Wasser und 1 Volumeteil konzentrierter Salzsäure versetzt. Nach 30minütigem Rühren wurde das Produkt abfiltriert, mit Wasser bis zur pH-Neutralität gewaschen und im Vakuum bei 75°C getrocknet. Anschließend wurde das so erhaltene Rohprodukt durch Umkristallisation aus N-Methylpyrrolidon von Spuren des Ausgangsmaterials befreit.
 5 [0051] Weitere Einzelheiten zu diesen Versuchen sowie deren Ergebnisse sind in Tabelle 2 zusammengestellt.

Tabelle 2

Bsp.	x [g]	Rylentetracarbonsäuremonoimidmonoanhydrid III	t [h]	Ausbeute [g]/[%]	Aussehen	Smp. [°C]
7	4,8	N-(2,6-Diisopropylphenyl)terrylen-3,4:11,12-tetracarbonsäuremonoimidmonoanhydrid	10	3,7/88	bläulich-schwarz, mikrokristallin	>350
8	4,4	N-(p-Methoxyphenyl)terrylen-3,4:11,12-tetracarbonsäuremonoimidmonoanhydrid	12	3,3/85	blau-schwarz, kristallin	>350
9	4,8	N-Dodecylterrylen-3,4:11,12-tetracarbonsäuremonoimidmonoanhydrid	15	3,9/90	schwarz, amorph	>350
10	5,6	N-(2,6-Diisopropylphenyl)quatterylen-3,4:13,14-tetracarbonsäuremonoimidmonoanhydrid	15	4,1/80	schwarz, mikrokristallin	>350
11	5,2	N-(p-Methoxyphenyl)quatterylen-3,4:13,14-tetracarbonsäuremonoimidmonoanhydrid	20	4,3/90	schwarz, mikrokristallin	>350
12	5,7	N-Dodecylquatterylen-3,4:13,14-tetracarbonsäuremonoimidmonoanhydrid	20	4,4/86	schwarz, amorph	>350

THIS PAGE BLANK (USPTO)

DE 101 08 156 A 1

Analytische Daten zu Beispiel 7

N-(2,6-Diisopropylphenyl)terrylen-3,4-dicarboximid

Elementaranalyse (Gew.-% ber./gef.):

C: 87,25/87,4; H: 5,15/5,2; N: 2,3/2,2; O: 5,3/5,2;

Masse (FD, 8 kV) m/z = 605,2 (M^+ , 100%)

IR (KBr): ν = 1687 (s, C=O), 1647 (s, C=O) cm^{-1} ;

UV/VIS (NMP): λ_{max} (ϵ) = 580 (42933), 639 (47376) nm.

5

10

Analytische Daten zu Beispiel 10

N-(2,6-Diisopropylphenyl)quaterrylen-3,4-dicarboximid

Elementaranalyse (Gew.-% ber./gef.):

C: 88,85/88,9; H: 4,85/4,8; N: 1,9/1,9; O: 4,4/4,4;

Masse (FD, 8 kV): m/z = 729,3 (M^+ , 100%);

IR (KBr): ν = 1690 (s, C=O), 1651 (s, C=O) cm^{-1} ;

UV/VIS (NMP): λ_{max} (ϵ) = 677 (72355), 740 (80001) nm.

15

20

C) Herstellung von erfundungsgemäßen 11-Bromterrylen-3,4-dicarbonsäureimiden und 13-Bromquaterrylen-3,4-dicarbonsäureimiden I ($R^1 = \text{Br}$)

Beispiele 13 bis 18

[0052] x g (0,1 mol) Rylenderivat I wurden 30 min in 1,5 l Eisessig suspendiert. Nach Zugabe von 1 g (3,9 mmol) Iod und 64 g (0,4 mol) Brom wurde die Mischung unter Lichtausschluß 1 h bei T°C gerührt.

[0053] Das Reaktionsgemisch wurde anschließend durch Hindurchleiten eines kräftigen Stickstoffstroms von überschüssigem Brom befreit, dann mit 1 l Methanol verdünnt und über Nacht bei Raumtemperatur gerührt.

[0054] Das ausgefallene Produkt wurde abfiltriert, zunächst mit 1,5 l Methanol und dann mit Wasser bis zum neutralen Ablauf gewaschen und bei 120°C im Vakuum getrocknet.

[0055] Weitere Einzelheiten zu diesen Versuchen sowie deren Ergebnisse sind in Tabelle 3 zusammengestellt.

25

30

35

40

45

50

55

60

65

Tabelle 3

Bsp.	x	Rylynderivat I	t [h]	T [°C]	Ausbeute [g]/[%]	Aussehen	Smp. [°C]
.	[g]						
13	60,6	N-(2,6-Diisopropylphenyl)terrylen-3,4-dicarbonsäureimid	8	30	61,6/90	tieffblau, kristallin	>350
14	55,2	N-(p-Methoxyphenyl)terrylen-3,4-dicarbon-säureimid	12	40	56,7/90	tieffblau, mikrokristallin	>350
15	61,4	N-Dodecylterrylen-3,4-dicarbonsäureimid	8	30	61,0/88	tieffblau, mikrokristallin	>350
16	73,0	N-(2,6-Diisopropylphenyl)quatterrylen-3,4-dicarbonsäureimid	12	35	68,7/85	blaugrün, kristallin	>350
17	67,6	N-(p-Methoxyphenyl)quatterrylen-3,4-dicarbonsäureimid	16	40	67,9/90	blaugrün, mikrokristallin	>350
18	73,8	N-Dodecylquatterrylen-3,4-dicarbonsäureimid	12	35	67,0/82	blaugrün, kristallin	>350

Analytische Daten zu Beispiel 13

11-Brom-N-(2,6-diisopropylphenyl)terrylen-3,4-dicarbonsäureimid

Elementaranalyse (Gew.-% ber./gef.):

DE 101 08 156 A 1

C: 77,2/77,0; H: 4, 4/4, 4; N: 2,05/2,1; O: 4,7/4,7; Br: 11,7/11,8;
 Masse (FD, 8 kv): m/z = 684,6 (M^+ , 100%);
 IR (KBr): ν = 1686 (s, C=O), 1645 (s, C=O) cm^{-1} ;
 UV/VIS (NMP): $\lambda_{\text{max}} (\epsilon)$ = 578 (46018), 643 (52323) nm.

5

Analytische Daten zu Beispiel 16

13-Brom-N-(2, 6-diisopropylphenyl)quaterrylen-3,4-dicarbonsäureimid

10

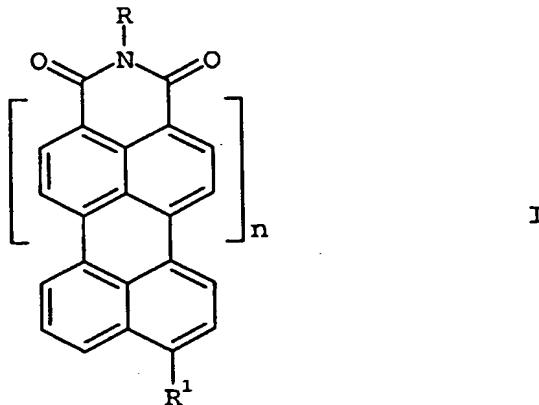
Elementaranalyse (Gew.-% ber./gef.):
 C: 80,2/80,5; H: 4,2/4,2; N: 1,7/1,7; O: 4,0/4,1; Br: 9,9/9,5;
 Masse (FD, 8 kv): m/z = 808,7 (M^+ , 100%);
 IR (KBr): ν = 1689 (s, C=O), 1650 (s, C=O) cm^{-1} ;
 UV/VIS (NMP): $\lambda_{\text{max}} (\epsilon)$ = 671 (80081), 748 (88256) nm.

15

Patentansprüche

1. Rylenderivate der allgemeinen Formel I

20



25

30

35

in der die Variablen folgende Bedeutung haben:

R Wasserstoff;
 C_1-C_{30} -Alkyl, dessen Kohlenstoffkette durch eine oder mehrere Gruppierungen -O-, -S-, -NR²-, -CO- und/oder -SO₂- unterbrochen sein kann und das durch Carboxy, Sulfo, Hydroxy, Cyano, C_1-C_6 -Alkoxy und/oder einen über ein Stickstoffatom gebundenen, 5- bis 7-gliedrigen heterocyclischen Rest, der weitere Heteroatome enthalten und aromatisch sein kann, ein- oder mehrfach substituiert sein kann;

40

Aryl oder Hetaryl, das durch C_1-C_{18} -Alkyl, C_1-C_6 -Alkoxy, Halogen, Hydroxy, Cyano, Carboxy, -CONHR³, -NHCOR³ und/ oder Aryl- oder Hetarylazo, das jeweils durch C_1-C_{10} -Alkyl, C_1-C_6 -Alkoxy, Halogen, Hydroxy, Cyano oder Carboxy substituiert sein kann, ein- oder mehrfach substituiert sein kann;

45

R¹ Wasserstoff oder Brom;

R² Wasserstoff oder C_1-C_6 -Alkyl;

R³ Wasserstoff; C_1-C_{18} -Alkyl; Aryl oder Hetaryl, das jeweils durch C_1-C_8 -Alkyl, C_1-C_6 -Alkoxy, Halogen, Hydroxy oder Cyano substituiert sein kann;

50

n 2 oder 3.

2. Rylenderivate der Formel I nach Anspruch 1, in der die Variablen die folgende Bedeutung haben:

R C_1-C_{30} -Alkyl, dessen Kohlenstoffkette durch eine oder mehrere Gruppierungen -O-, -S-, -NR²-, -CO- und/oder -SO₂- unterbrochen sein kann und das durch Hydroxy, Cyano, C_1-C_6 -Alkoxy und/oder einen über ein Stickstoffatom gebundenen, 5- bis 7-gliedrigen heterocyclischen Rest, der weitere Heteroatome enthalten und aromatisch sein kann, ein- oder mehrfach substituiert sein kann; Aryl oder Hetaryl, das durch C_1-C_{18} -Alkyl, C_1-C_6 -Alkoxy, Hydroxy, Cyano, -CONHR³, und/oder -NHCOR³ ein- oder mehrfach substituiert sein kann;

55

R¹ Wasserstoff oder Brom;

R² Wasserstoff oder C_1-C_6 -Alkyl;

R³ Wasserstoff; C_1-C_{18} -Alkyl; Aryl oder Hetaryl, das jeweils durch C_1-C_8 -Alkyl, C_1-C_6 -Alkoxy oder Cyano substituiert sein kann;

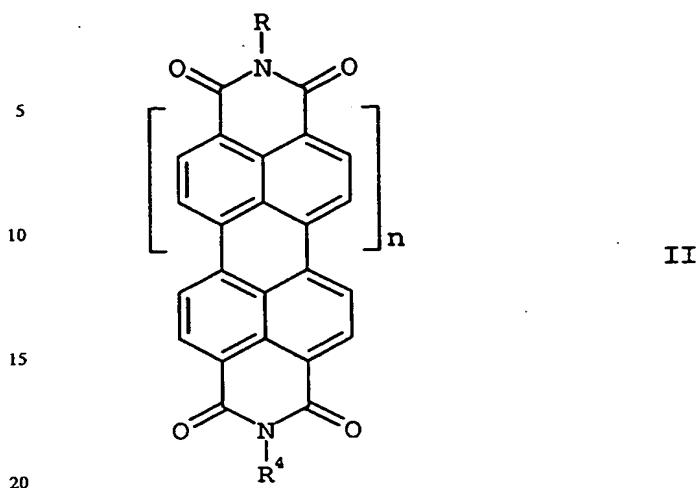
60

n 2 oder 3.

3. Verfahren zur Herstellung von Rylenderivaten der Formel I gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß man

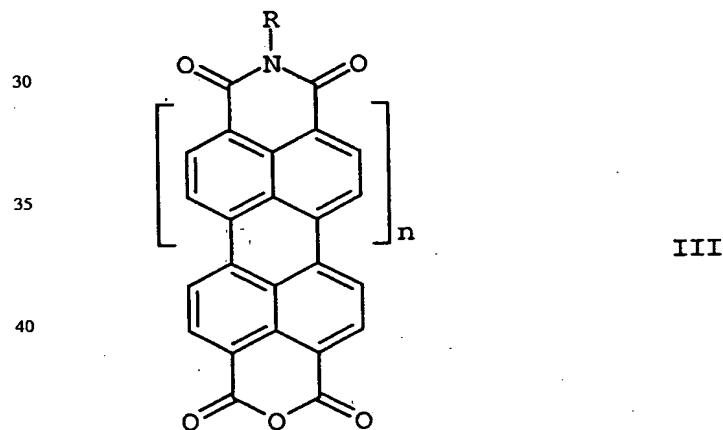
65

a) ein asymmetrisches Rylentetracarbonsäurediimid der allgemeinen Formel II



in der R^4 $C_5\text{-}C_8$ -Cycloalkyl, dessen Kohlenstoffgerüst durch eine oder mehrere Gruppierungen -O-, -S- und/oder -NR²- unterbrochen sein kann und das durch C₁-C₆-Alkyl ein- oder mehrfach substituiert sein kann, bedeutet,

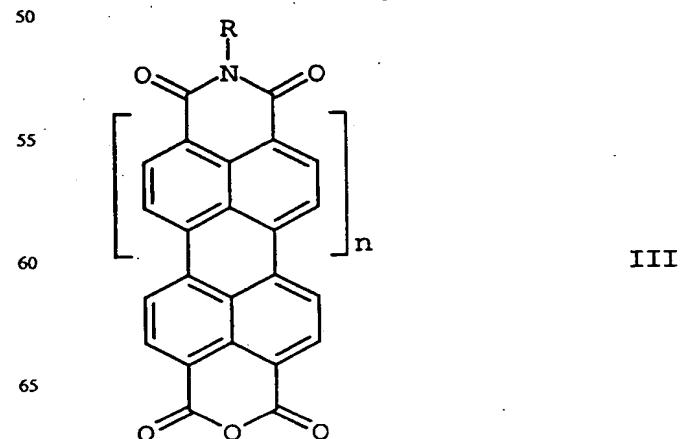
25 unter alkalischen Bedingungen in Gegenwart eines polaren organischen Lösungsmittels einseitig verseift,
b) das in Schritt a) gebildete Rylentetracarbonsäuremonoimmonoanhydrid der allgemeinen Formel III



in Gegenwart einer tertiären stickstoffbasischen Verbindung und eines Übergangsmetallkatalysators einseitig decarboxyliert und

c) das Reaktionsprodukt gewünschtenfalls abschließend mit elementarem Brom umsetzt.

4. Verfahren zur Herstellung von Rylentetracarbonsäuremonoimmonoanhydriden der allgemeinen Formel III



DE 101 08 156 A 1

in der die Variablen folgende Bedeutung haben:

R Wasserstoff;

C₁-C₃₀-Alkyl, dessen Kohlenstoffkette durch eine oder mehrere Gruppierungen -O-, -S-, -NR²-, -CO- und/oder -SO₂- unterbrochen sein kann und das durch Carboxy, Sulfo, Hydroxy, Cyano, C₁-C₆-Alkoxy und/oder einen über ein Stickstoffatom gebundenen, 5- bis 7-gliedrigen heterocyclischen Rest, der weitere Heteroatome enthalten und aromatisch sein kann, ein- oder mehrfach substituiert sein kann;

5

Aryl oder Hetaryl, das durch C₁-C₁₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, Halogen, Hydroxy, Cyano, Carboxy, -CONHR³, -NHCOR³ und/oder Aryl- oder Hetarylazo, das jeweils durch C₁-C₁₀-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, Halogen, Hydroxy, Cyano oder Carboxy substituiert sein kann, ein- oder mehrfach substituiert sein kann;

10

R¹ Wasserstoff oder Brom;

R² Wasserstoff oder C₁-C₆-Alkyl;

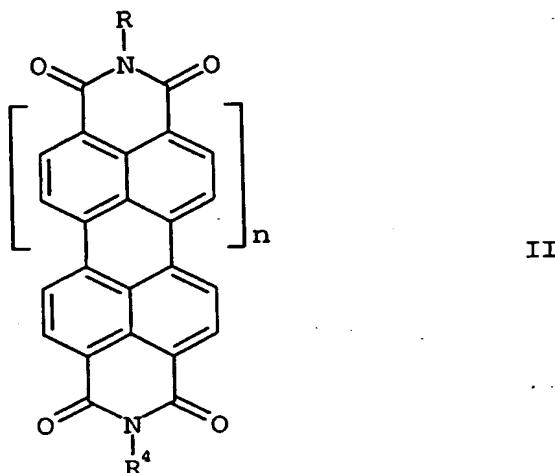
R³ Wasserstoff; C₁-C₁₈-Alkyl; Aryl oder Hetaryl, das jeweils durch C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, Halogen, Hydroxy oder Cyano substituiert sein kann;

15

n 2 oder 3,

dadurch gekennzeichnet, daß man ein asymmetrisches Rylentetracarbonsäurediimid der allgemeinen Formel II

15



20

25

30

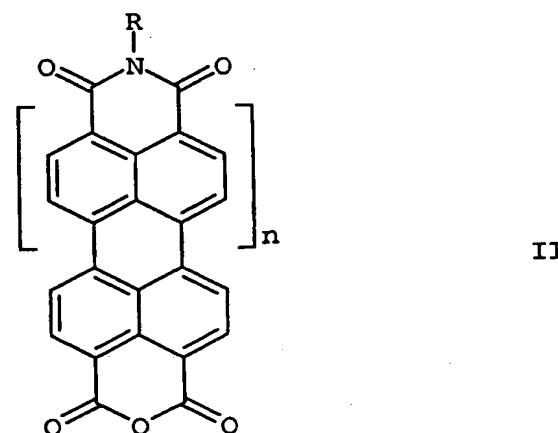
35

in der R⁴ C₅-C₈-Cycloalkyl, dessen Kohlenstoffgerüst durch eine oder mehrere Gruppierungen -O-, -S- und/oder -NR²- unterbrochen sein kann und das durch C₁-C₆-Alkyl ein- oder mehrfach substituiert sein kann, bedeutet, unter alkalischen Bedingungen in Gegenwart eines polaren organischen Lösungsmittels einseitig verseift.

unter alkalischen Bedingungen in Gegenwart eines polaren organischen Lösungsmittels einseitig verseift.

5. Rylentetracarbonsäuremonooimidmonoanhydride der allgemeinen Formel III

40



45

50

55

60

in der die Variablen folgende Bedeutung haben:

R Wasserstoff;

C₁-C₃₀-Alkyl, dessen Kohlenstoffkette durch eine oder mehrere Gruppierungen -O-, -S-, -NR²-, -CO- und/oder -SO₂- unterbrochen sein kann und das durch Carboxy, Sulfo, Hydroxy, Cyano, C₁-C₆-Alkoxy und/oder einen über ein Stickstoffatom gebundenen, 5- bis 7-gliedrigen heterocyclischen Rest, der weitere Heteroatome enthalten und aromatisch sein kann, ein- oder mehrfach substituiert sein kann;

65

Aryl oder Hetaryl, das durch C₁-C₁₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, Halogen, Hydroxy, Cyano, Carboxy, -CONHR³, -NHCOR³ und/oder Aryl- oder Hetarylazo, das jeweils durch C₁-C₁₀-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, Halogen, Hydroxy, Cyano oder Carboxy substituiert sein kann, ein- oder mehrfach substituiert sein kann;

DE 101 08 156 A 1

R¹ Wasserstoff oder Brom;

R² Wasserstoff oder C₁-C₆-Alkyl;

R³ Wasserstoff; C₁-C₁₈-Alkyl; Aryl oder Hetaryl, das jeweils durch C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, Halogen, Hydroxy oder Cyano substituiert sein kann;

5 n 2 oder 3.

6. Verwendung von Rylenderivaten der allgemeinen Formel I gemäß Anspruch 1 oder 2 zur Einfärbung von hochmolekularen organischen und anorganischen Materialien.

7. Verwendung nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß Kunststoffe, Lacke und Druckfarben und oxidischen Schichtsystemen eingefärbt werden.

10 8. Verwendung von Rylenderivaten der allgemeinen Formel I gemäß Anspruch 1 oder 2 als Dispergierhilfsmittel, Pigmentadditive für organische Pigmente und Zwischenprodukte für die Herstellung von Fluoreszenzfarbmitteln und Pigmentadditiven.

9. Verwendung von Rylenderivaten der allgemeinen Formel I gemäß Anspruch 1 oder 2 als fargebende Komponente in der dekorativen Kosmetik.

15 10. Verwendung von Rylenderivaten der allgemeinen Formel I gemäß Anspruch 1 oder 2 zur Herstellung farbiger oder im nahinfraroten Bereich des elektromagnetischen Spektrums absorbierender und/oder emittierender wässriger Polymerisatdispersionen.

11. Verwendung von Rylenderivaten der allgemeinen Formel I gemäß Anspruch 1 oder 2 als Photoleiter in der Elektrophotographie, als Emitter in Elektro- und Chemilumineszenzanwendungen, als Aktivkomponenten in der Fluoreszenzkonversion und als Laserfarbstoffe.

20 12. Verwendung von Rylentetraacbonsäuremonoimidmonoanhydriden der allgemeinen Formel III gemäß Anspruch 5 zur Einfärbung von hochmolekularen organischen und anorganischen Materialien.

13. Verwendung von Rylentetraacbonsäuremonoimidmonoanhydriden der allgemeinen Formel III gemäß Anspruch 5 als Dispergierhilfsmittel, Pigmentadditive für organische Pigmente und Zwischenprodukte für die Herstellung polymerisierbarer Farbmittel und Pigmentadditive.

25 14. Verwendung von Rylentetraacbonsäuremonoimidmonoanhydriden der allgemeinen Formel III gemäß Anspruch 5 als fargebende Komponente in der dekorativen Kosmetik.

15. Verwendung von Rylentetraacbonsäuremonoimidmonoanhydriden zur Herstellung farbiger oder im nahinfraroten Bereich des elektromagnetischen Spektrums absorbierender und/oder emittierender wässriger Polymerisatdispersionen.

30 16. Verwendung von Rylentetraacbonsäuremonoimidmonoanhydriden als Photoleiter in der Elektrophotographie, als Emitter in Elektro- und Chemilumineszenzanwendungen, als Aktivkomponenten in der Fluoreszenzkonversion und als Laserfarbstoffe.

35

40

45

50

55

60

65